

## PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11)Publication number : 2003-249689

(43)Date of publication of application : 05.09.2003

(51)Int.Cl.

H01L 33/00

(21)Application number : 2002-356462

(71)Applicant : NICHIA CHEM IND LTD

(22)Date of filing : 09.12.2002

(72)Inventor : KODA SHIGETSUGU

(30)Priority

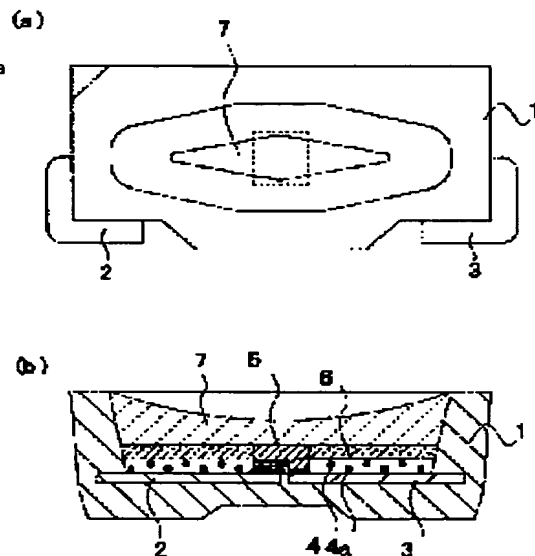
Priority number : 2001384270 Priority date : 18.12.2001 Priority country : JP

## (54) LIGHT EMITTING DEVICE

(57)Abstract:

PROBLEM TO BE SOLVED: To provide a light emitting device capable of reducing color dispersion in a plurality of light emitting devices and improving reliability and mass-productivity.

SOLUTION: The light emitting device has a light emitting element 5 having a pair of positive and negative electrodes on the same face side and capable of emitting a part of light from side end faces, and a color conversion layer 6 having a fluorescent substance capable of absorbing a part of light emitted from the light emitting element 5 and emitting light of a different wavelength. The light emitting element 5 is mounted on a substrate having an external electrode on its surface as a flip chip through an anisotropic conductive layer 4 having conductive gains 4a, and the color conversion layer 6 is laminated on the conductive layer 4 extended to the periphery of the element 5 so as to come into contact with the layer 4. One side of the side end faces of the element 5 is coated with the conductive layer 4, and the other side is coated with the color conversion layer 6.



## LEGAL STATUS

[Date of request for examination]

15.11.2005

[Date of sending the examiner's decision of rejection]

[Kind of final disposal of application other than the examiner's decision of rejection or application converted registration]

[Date of final disposal for application]

[Patent number]

[Date of registration]

[Number of appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of requesting appeal against examiner's decision of rejection]

[Date of extinction of right]

(19)日本国特許庁 (J P)

(12) 公 開 特 許 公 報 (A)

(11)特許出願公開番号  
特開2003-249689  
(P2003-249689A)

(43)公開日 平成15年9月5日(2003.9.5)

(51)Int.Cl.

H 0 1 L 33/00

識別記号

F I

H 0 1 L 33/00

テーマコード(参考)

N 5 F 0 4 1

審査請求 未請求 請求項の数5 O L (全 13 頁)

(21)出願番号 特願2002-356462(P2002-356462)

(22)出願日 平成14年12月9日(2002.12.9)

(31)優先権主張番号 特願2001-384270(P2001-384270)

(32)優先日 平成13年12月18日(2001.12.18)

(33)優先権主張国 日本(J P)

(71)出願人 000226057

日亜化学工業株式会社

徳島県阿南市上中町岡491番地100

(72)発明者 幸田 滋嗣

徳島県阿南市上中町岡491番地100 日亜化学工業株式会社内

Fターム(参考) 5F041 AA06 AA11 AA14 AA42 AA43

AA47 CA40 DA02 DA09 DA12

DA13 DA19 DA20 DA34 DA35

DA36 DA45 DA55 DA56 DA57

DA59 DA82 DB09 EE25

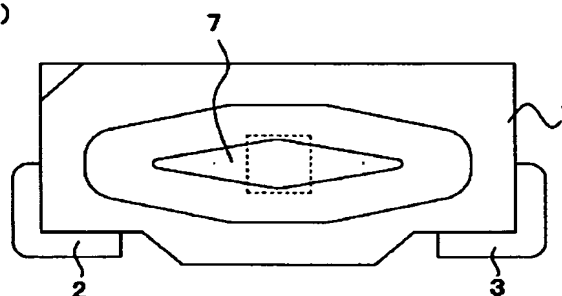
(54)【発明の名称】 発光装置

(57)【要約】 (修正有)

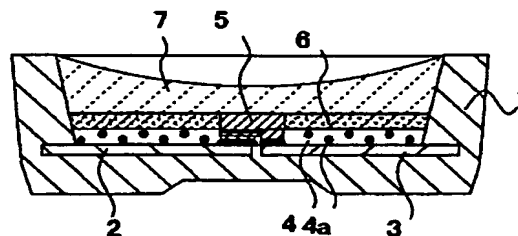
【課題】 発光装置間にて色バラツキの少なく、信頼性及び量産性に優れた発光装置を提供する。

【解決手段】 同一面側に正負一対の電極を有し且つ側方端面から発光の一部を発光することが可能な発光素子5と、該発光素子の光の一部を吸収し異なる波長を有する光を発光することが可能な蛍光物質を有してなる色変換層6と、を有する発光装置であって、前記発光素子5は、表面に外部電極を有する基面に対し、導電粒子4aを有して成る異方性導電層4を介してフリップチップ実装されており、前記色変換層6は、前記発光素子5の周囲に延在した前記異方性導電層4上に接して積層され、前記発光素子5の側方端面は、厚み方向において一方側は前記異方性導電層4にて被覆され他方側は前記色変換層6にて被覆されていることを特徴とする。

(a)



(b)



## 【特許請求の範囲】

【請求項 1】 同一面側に正負一對の電極を有し且つ側方端面から発光の一部を発光することが可能な発光素子と、該発光素子の光の一部を吸収し異なる波長を有する光を発光することが可能な蛍光物質を有してなる色変換層と、を有する発光装置であって、前記発光素子は、表面に外部電極を有する基面に対し、導電粒子を有して成る異方性導電層を介してフリップチップ実装されており、

前記色変換層は、前記発光素子の周囲に延在した前記異方性導電層上に接して積層され、

前記発光素子の側方端面は、厚み方向において一方側は前記異方性導電層にて被覆され他方側は前記色変換層にて被覆されていることを特徴とする発光装置。

【請求項 2】 前記色変換層は前記異方性導電層上面からほぼ均一な厚みで垂直に立ち上がった形状をなしており、前記蛍光物質は前記透光性部材 100 重量部に対して 30 重量部～100 重量部%含有されていることを特徴とする請求項 1 に記載の発光装置。

【請求項 3】 前記色変換層の表面は、前記発光素子の表面とほぼ平行であり、前記発光素子露出面及び前記色変換層露出面に接して連続した拡散層を有することを特徴とする請求項 2 に記載の発光装置。

【請求項 4】 前記発光素子は、前記色変換層を挟んで複数個載置されていることを特徴とする請求項 1 乃至 3 に記載の発光装置。

【請求項 5】 前記発光素子は、複数の発光層を有するアレイ発光素子であることを特徴とする請求項 1 乃至 4 に記載の発光装置。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【発明の属する技術分野】本発明は発光装置に関し、特に色むらの少ない均一な発光、例えば白色光を高出力で得ることが可能な発光装置に関する。

## 【0002】

【従来の技術】今日、高輝度、高出力な半導体発光素子や小型且つ好感度な発光装置が開発され種々の分野に利用されている。このような発光装置は、小型、低消費電力や軽量等の特徴を生かして、例えば、光プリンターヘッド光源、液晶バックライト光源、各種メータの光源、及び各種読みとりセンサー等に利用されている。

【0003】発光装置である発光ダイオード（以下、LEDとも呼ぶ。）は、小型で効率が良く鮮やかな色の発光が可能である。また、半導体素子であるため球切れがなく、初期駆動特性及び耐震性に優れ、さらにON/OFF点灯の繰り返しに強いという特徴を有する。そのため、各種インジケータや種々の光源として広く利用されている。しかしながら、LEDは優れた単色性のピーク波長を有するが故に白色系などの発光波長を発光することが難しい。

【0004】そこで近年、発光素子によって発光された光が蛍光体によって色変換されて出力される発光ダイオードが用いられている。この発光ダイオードは、1種類の発光素子を用いて白色系など他の発光色を発光させることができる。

【0005】例えば、白色系の発光装置を構築する場合、半導体発光素子から青色光を発光させる一方、前記半導体発光素子を封止する封止樹脂中に黄色系の光を発光する蛍光物質を分散させ、該蛍光物質に半導体発光素子からの発光の一部を吸収させ波長変換して黄色光を発光させ、これら青色光と黄色光との混色により白色系の混色光が発光可能な発光ダイオードを形成することができる（例えば、特許文献1参照。）。

## 【0006】

【特許文献1】特表2000-512806号公報

## 【0007】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、このように形成された発光ダイオード間において、著しく色のバラツキが観測される。

【0008】白色系発光ダイオードが屋内用のディスプレイや照明に利用され、より色調が厳格に求められる現在では、これらの色バラツキは大きな問題となっている。

【0009】一方、定電力下において発光のバラツキが極めて少ない白色系発光ダイオードを選択してLED表示器などを構成させることもできるが、歩留まりが極めて悪いものとなる。

【0010】そこで本発明は、上記問題点を解決し、色むらの少ない均一な混色光を高出力で得ることが可能で且つ発光装置間にて色バラツキの少ない量産性に優れた発光装置を提供することを課題とする。

## 【0011】

【課題を解決するための手段】本発明に係る発光装置は、同一面側に正負一對の電極を有し且つ側方端面から発光の一部を発光することが可能な発光素子と、該発光素子の光の一部を吸収し異なる波長を有する光を発光することが可能な蛍光物質を有してなる色変換層と、を有する発光装置であって、前記発光素子は、表面に外部電極を有する基面に対し、導電粒子を有して成る異方性導電層を介してフリップチップ実装されており、前記色変換層は、前記発光素子の周囲に延在した前記異方性導電層上に接して積層され、前記発光素子の側方端面は、厚み方向において一方側は前記異方性導電層にて被覆され他方側は前記色変換層にて被覆されていることを特徴とする。

【0012】本発明の特徴の1つは、発光面側に電極等光を遮る部材を配置しないと共に、発光素子の側方端面の一部を色変換層にて被覆し前記側方端面の他の部分を導電性粒子を有する異方性導電層にて被覆する点にある。これにより、前記発光素子の電極形成面側及び前記

側方端面から発光される光の一部を色変換層の底面側に配置された異方性導電層に導き、導かれた光を前記異方性導電層中の導電粒子により反射散乱させ、上層部の色変換層へと効率よく取り出すことができる。これにより、今まで有効利用されていなかった色変換層の底面側へ励起光を照射することができ、蛍光物質の変換効率を飛躍的に高めることができる。

【0013】また、色変換層は、前記異方性導電層上面からほぼ均一な厚みで垂直に立ち上がった形状を成しており、前記蛍光物質は、前記透光性部材100重量部に対して30重量部～100重量部含有されていることを特徴とする。このように発光素子の上方に蛍光物質を載置せず、側方端面側のみに載置される色変換層の蛍光物質含有量を前記色変換層から発光される光が前記蛍光物質から発光される光のみとなるように調整することにより、発光素子自身の単色光及び色変換層から発光される単色光をそれぞれ高出力に取り出すことができる。このように、蛍光物質の配置場所を一定とすることにより、発光装置間に色バラツキがなく高出力に発光することが可能な発光装置を歩留まり良く得ることができる。

【0014】また、前記色変換層は、ほぼ前記発光素子と同一の厚みを有し、前記発光素子の露出面及び前記色変換層の露出面に接して連続した拡散層を有することを特徴とする。これにより、発光素子及び蛍光物質からそれぞれ発光される光の混色性を高めることができる。

【0015】また、前記発光素子は、前記色変換層を挟んで複数個載置されていることを特徴とする。具体的には、外部電極を有する基面上に、複数個の発光素子が一定空間を設けて載置され、前記空間は前記色変換層にて密閉されてなる集積型光装置である。本発明では、発光素子からの光の一部を色変換層底面側へと導く部材として、電気的接続手段でもある異方性導電層を用いているため、発光素子側の多数の電極と基面側の多数の電極とを一度に信頼性高く接続することができ、多くの小型化発光素子を信頼性高く高密度に実装することが可能である。これにより、更に混色性に優れた集積型発光装置が得られる。

【0016】また発光素子として、複数の発光層を有するアレイ発光素子、つまり同一面側に複数の正負一對の電極を有するアレイ発光素子を用いることも可能である。このように、本発明において異方性導電層は、色変換型発光装置において、光学特性、信頼性、光学特性、及び生産性を高める優れた部材といえる。

#### 【0017】

【発明の実施の形態】本発明者は、種々の実験の結果、蛍光物質を利用した発光装置において、発光素子から発光される光を最大限に利用することが可能となるように導くことにより、発光装置の光度向上、発光装置間の色バラツキ及び色むらの改善が可能であることを見だし本発明を成すに至った。

【0018】色変換型発光装置は、半導体発光素子から単色光を発光させる一方、前記半導体発光素子を封止する封止樹脂中に前記単色光の一部を吸収し異なる波長を有する光を発光することが可能な蛍光物質を分散させ、これらの光の混色により所望とする色調を得る方法が主流である。

【0019】しかしながら、蛍光物質の比重は、液状樹脂の数倍に達するものであり、また熱硬化性樹脂は、加熱硬化後、粘度が大きく低下するため、発光素子を蛍光物質含有の液状樹脂で覆い熱硬化させると、樹脂中の蛍光物質の殆どは発光素子周辺に密に集結し沈降してしまうのが現状である。集結して沈降した蛍光物質は、ある程度の嵩を成して発光素子周囲に沈降する。このため、発光素子からの光を最も効率よく吸収するのは実際には発光素子周辺の最表面に位置する蛍光物質のみと考えられ、その他の殆どの蛍光物質は本来の作用を発揮できず単に光のエネルギー低下の要因する障害物となっている。

【0020】これに対して、正負一對の電極を凹部底面に有するパッケージ内に発光素子を電気的に接続し、前記パッケージ側壁内側面に蛍光物質をコーティングする方法が多数提案されている（特開平10-112557号公報、特開平11-274572号公報、等参照）。この手法により発光素子上面から発光される光は効率よく取り出されるが、発光素子の側方端面から発光される光が十分に利用されていなかった。

【0021】そこで本発明は、全ての蛍光物質に効率よく発光素子からの励起光を照射させ、更に蛍光物質の載置場所を確定することにより、高輝度で且つ発光装置間に色バラツキの少ない色変換型発光装置を実現する。

【0022】以下、本発明を図面に示す具体例に基づいて詳細に説明する。図1は、本発明の形態であるSMD型発光ダイオードの模式的断面図である。凹部を有し、該凹部底面から一對のリード電極2、3の表面が露出されるようにインサート成形されてなるパッケージ1を用い、前記凹部底面と発光素子5の電極形成面側とを対向させ、それぞれの対向面に接して異方性導電層4が介在され電気的に接続されている。また、前記異方性導電層4は凹部底面一面に連続的に形成されている。異方性導電層中には、発光素子から発光される光を効率よく反射することが可能であり且つ導電性を有する導電粒子4aが含有されている。前記発光素子5は、サファイア基板上に窒化ガリウムであるパッファ層を介して窒化物半導体（ $Al_xGa_yIn_zN$ 、 $0 \leq x \leq 1$ 、 $0 \leq y \leq 1$ 、 $0 \leq z \leq 1$ 、 $X+Y+Z=1$ ）からなるpn接合が形成されている。また、前記異方性導電層4は発光素子周囲に延在しており、前記異方性導電層4表面に接して、前記発光素子からの光の一部を吸収し異なる波長の光を発光することが可能な蛍光物質を有する色変換層6が設けられている。また発光素子の側方端面は、厚み方向にお

いて前記基面側である下方一部は前記異方性導電層 4 にて被覆され、他の上方部は前記色変換層 6 にて被覆されている。また、前記発光素子 5 表面と前記色変換層 6 表面はほぼ平行であり、これらの面に接して連続した拡散層が設けられている。以下、本発明の実施の形態である発光装置の各構成について詳述する。

【発光素子 5】本発明において発光素子 5 は、同一面側に正負一對の電極を有し且つ側方端面から発光の一部を発光することが可能であれば特に限定されないが、用いる蛍光物質を励起可能な波長を発光できる発光層を有する半導体発光素子を用いることが好ましい。このような半導体発光素子として ZnSe や GaN など種々の半導体を挙げることができるが、蛍光物質を効率良く励起できる短波長を発光することが可能な窒化物半導体 ( $\text{In}_x\text{Al}_y\text{Ga}_{1-x-y}\text{N}$ ,  $0 \leq x$ ,  $0 \leq y$ ,  $x+y \leq 1$ ) が好適に挙げられる。半導体の構造としては、MIS 接合、PIN 接合や pn 接合などを有するホモ構造、ヘテロ構造あるいはダブルヘテロ構成のものが挙げられる。半導体層の材料やその混晶度によって発光波長を種々選択することができる。また、半導体活性層を量子効果が生ずる薄膜に形成させた単一量子井戸構造や多重量子井戸構造とすることもできる。

【0023】窒化物半導体を使用した場合、半導体用基板にはサファイア、スピネル、SiC、Si、ZnO 等の材料が好適に用いられる。結晶性の良い窒化物半導体を量産性よく形成させるためにはサファイア基板を用いることが好ましい。このサファイア基板上に MOCVD 法などを用いて窒化物半導体を形成させることができる。サファイア基板上に GaN、AlN、GaAlN 等のバッファ層を形成しその上に pn 接合を有する窒化物半導体を形成させる。

【0024】窒化物半導体を使用した pn 接合を有する発光素子例として、バッファ層上に、n 型窒化ガリウムで形成した第 1 のコンタクト層、n 型窒化アルミニウム・ガリウムで形成させた第 1 のクラッド層、窒化インジウム・ガリウムで形成した活性層、p 型窒化アルミニウム・ガリウムで形成した第 2 のクラッド層、p 型窒化ガリウムで形成した第 2 のコンタクト層を順に積層させたダブルヘテロ構成などが挙げられる。窒化物半導体は、不純物をドーピングしない状態で n 型導電性を示す。発光効率を向上させるなど所望の n 型窒化物半導体を形成させる場合は、n 型ドーパントとして Si、Ge、Se、Te、C 等を適宜導入することが好ましい。一方、p 型窒化物半導体を形成させる場合は、p 型ドーパントである Zn、Mg、Be、Ca、Sr、Ba 等をドーピングさせる。窒化物半導体は、p 型ドーパントをドーピングしただけでは p 型化しにくいいため p 型ドーパント導入後に、炉による加熱やプラズマ照射等により低抵抗化させることが好ましい。電極形成後、半導体ウェハーからチップ状にカットさせることで窒化物半導体からなる発光素子を形

成させることができる。

【0025】本発明の発光ダイオードにおいて白色系を発光させる場合は、蛍光物質からの発光波長との補色関係や透光性樹脂の劣化等を考慮して発光素子の発光波長は 400 nm 以上 530 nm 以下が好ましく、420 nm 以上 490 nm 以下がより好ましい。発光素子と蛍光物質との励起、発光効率をそれぞれより向上させるためには、450 nm 以上 475 nm 以下がさらに好ましい。なお、色変換層の蛍光物質、拡散層、及び異方性導電層の構成部材である透光性部材に比較的紫外線により劣化しにくい樹脂や無機物であるガラス等を用いた場合、400 nm より短い紫外線領域或いは可視光の短波長領域を主発光波長とする発光素子を用いることもできる。紫外領域の波長を有する発光素子を利用する色変換型発光装置は、蛍光物質により変換された発光色のみにより色度が決定されるため、可視光を発光する半導体発光素子を用いた場合に比較して半導体発光素子の波長などのバラツキを吸収することができ量産性を向上させることができる。

【異方性導電層 4】本実施の形態において、上記発光素子は、正負一對の電極が設けられた電極形成面側がパッケージ凹部の底面から露出された外部電極と対向するように載置され、連続した異方性導電層 4 を介してフリップチップ実装されている。

【0026】本発明において異方性導電層 4 は、熱可塑性又は熱硬化性を有する有機物又は無機物からなる材料中に、発光素子からの光を効率よく反射することが可能でかつ導電性を有する導電粒子が分散されている。熱可塑性又は熱硬化性を有する有機物からなる材料として、例えばエポキシ樹脂、アクリル樹脂、シリコンなどの透明樹脂などが好適に用いられる。また、具体的導電粒子として、Ni 粒子や、プラスチック、シリカ等の粒子表面に Ni や Au 等からなる金属コートを有するものが挙げられる。本発明において導電粒子の含有量は、前記接着剤対して 0.3 vol% 以上 1.2 vol% 以下が好ましく、このような異方性導電層は、発光素子を実装する際の加熱及び加圧により容易に層の膜厚方向間において高い導電性を得ることができる。一方、層の面方向では導電粒子の充填量が少ないため導電粒子同士の接触による隣接電極間の短絡が発生せず高い絶縁性を維持することができる。より好ましくは、異方性導電層において 1 mm<sup>2</sup> 粒子数が 3500 個以上 5000 個以下であると、各電極間のピッチが狭い小型発光素子を信頼性高く基面上の外部電極と微細接続することができる。更に、異方性導電層にて発光素子からの光を効率よく上層部の色変換層へと反射散乱させることができる。

【0027】本発明において、前記異方性導電層 4 は、それぞれ対向した発光素子表面と基面との間を密閉していると共に、発光素子の側方端面の一部を直接被覆している。これにより、発光素子から発光される光の一部を

異方性導電層中に取り込み、前記異方性導電層中の導電粒子にて反射散乱し、色変換層中の蛍光物質を下方から照射することができる。従来の発光装置では、発光素子に隣接する蛍光物質若しくは最表面に存在する蛍光物質のみが効率よく励起され、他の下方に埋まってしまった蛍光物質は十分に本来の作用を成すことができなかった。しかしながら本発明では、発光素子端面から発光される光の一部を変換層の下方から全面に渡り照射することにより、色変換層は最表面である上方、発光素子に隣接する側面、及び異方性導電膜と接する下方から励起光が照射されるため、殆どの蛍光物質において色変換効率を高めることができる。また、色変換層にて変換された光がが基面方向に反射されてしまった場合でも、上記異方性導電層中の導電粒子にて迅速に進路変更させ上方へ取り出すことができる。

【色変換層6】本発明の発光装置において、上記異方性導電層は基面端部まで延在しており、その異方性導電層の延在部上面及び発光素子側方端面に接して色変換層が設けられている。このように構成することにより、色変換層は、隣接する発光素子の側方端面から励起光が照射される他、発光素子からの光を異方性導電膜を介して下方面から吸収することができる。これにより、色変換層は全面から励起光を吸収することができるため、必要最小限の蛍光物質質量にて高輝度に発光することが可能な発光装置を得ることができる。

【0028】本実施の形態において、色変換層は透光性部材中に発光素子の光の一部を吸収し異なる波長の光を発光することが可能な蛍光物質が含有されてなる。前記透光性部材は、用いる発光素子の特徴や用途に応じて、有機物及び無機物のいずれも用いることができる。本発明に好適に用いられる透光性部材の具体的材料としては、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、シリコンなどの耐候性に優れた透明樹脂やガラスなどが好適に用いられる。ここで、異方性導電層に含有される材料と同じ材料を色変換層の材料として含有させることにより、異方性導電層と色変換層の接着性が向上し、両者の剥離を防ぐことができる。また、前記蛍光物質と共に顔料を含有させても良い。

【0029】また、色変換層を、上記異方性導電層上からほぼ均一な厚みで垂直に立ち上がった形状とし、透光性部材100重量部に対して蛍光物質の含有量は100重量部以上200重量部以下とすると、高出力に発光することが可能な発光装置を量産性良く得ることができる。

【0030】発光素子として、400nm付近の短波長域を主発光ピークとする紫外線が発光可能な発光素子を用いる場合、色変換層は比較的紫外線に強い樹脂やガラス等と前記紫外線を吸収して可視光を発光することが可能な蛍光物質にて構成することが好ましい。このような短波長の光により赤、青、及び緑に蛍光可能な蛍光物

質、例えば赤色蛍光体として $Y_2O_2S:Eu$ 、青色蛍光体として $Sr_5(PO_4)_3Cl:Eu$ 、及び緑色蛍光体として $(SrEu)O \cdot Al_2O_3$ を前記耐紫外線樹脂などに含有させ、短波長発光の発光素子の側方端面に色変換薄膜層として配置することにより、白色光を得ることができる。このように短波長発光の発光素子を用いる場合、前記発光素子の基板側は不透光性とすると共に、異方性導電層及び拡散層は前記色変換層と同様に比較的紫外線に強い樹脂やガラスを主剤として用いることが好ましい。上記蛍光物質の他、赤色蛍光体として $3.5MgO \cdot 0.5MgF_2 \cdot GeO_2:Mn$ 、 $Mg_6As_2O_{11}:Mn$ 、 $Gd_2O_2:Eu$ 、 $LaO_2S:Eu$ 、青色蛍光体として $Re_{10}(PO_4)_6Q_2:Eu$ 、 $Re_{10}(PO_4)_6Q_2:Eu$ 、 $Mn$ （ただし $Re$ は $Sr$ 、 $Ca$ 、 $Ba$ 、 $Mg$ 、 $Zn$ から選択される少なくとも一種、 $Q$ はハロゲン元素の $F$ 、 $Cl$ 、 $Br$ 、 $I$ から選択される少なくとも一種）、 $BaMg_2Al_{16}O_{27}:Eu$ 等を好適に用いることができる。これらの蛍光物質を用いることにより高輝度に発光可能な白色発光ダイオードを得ることができる。

【0031】前記色変換薄膜層は、これら異種の蛍光物質を混合して1層の色変換薄膜層として配置させる場合、各種の蛍光物質の中心粒径及び形状は類似していることが好ましい。これによって各種蛍光物質から発光される光が良好に混色され色ムラを抑制することができる。また、各蛍光物質をそれぞれの色変換薄膜層として積層してもよい。各種の蛍光物質による色変換薄膜層を多重薄膜層として配置させる場合、それぞれの蛍光物質の紫外光透過率を考慮して、赤色蛍光物質層、緑色蛍光物質層、及び青色蛍光物質層と順に積層させることが好ましい。また、前記色変換多重薄膜層において下層から上層にかけて各層中の蛍光物質の粒径が小さくなるように、各種蛍光物質の中心粒径を青色蛍光物質>緑色蛍光物質>赤色蛍光物質とすると、最上層まで良好に紫外光を蛍光物質に透過させ可視光に変換することができ紫外線のものを防止することができる。そのほか、ストライプ状、格子状、またはトライアングル状となるように各色変換層を素子上に配置させることもできる。このように各層の間に間隔を設けて配置させると混色性が良好となり好ましい。

【蛍光物質】本発明で用いられる大粒径蛍光物質の粒径は、中心粒径が $6\mu m \sim 50\mu m$ の範囲が好ましく、より好ましくは $15\mu m \sim 30\mu m$ であり、このような粒径を有する蛍光物質は光の吸収率及び変換効率が高く且つ励起波長の幅が広い。 $6\mu m$ より小さく蛍光物質は、比較的凝集体を形成しやすく、液状樹脂中において密になって沈降されるため、光の透過効率を減少させてしまう他、光の吸収率及び変換効率が悪く励起波長の幅も狭い。

【0032】ここで本発明において、蛍光物質の粒径と

は、体積基準粒度分布曲線により得られる値であり、前記体積基準粒度分布曲線は、レーザ回折・散乱法により蛍光物質の粒度分布を測定し得られるものである。具体的には、気温25℃、湿度70%の環境下において、濃度が0.05%であるヘキサメタリン酸ナトリウム水溶液に蛍光物質を分散させ、レーザ回折式粒度分布測定装置(SALD-2000A)により、粒径範囲0.03μm~700μmにて測定し得られたものである。本発明において蛍光物質の中心粒径とは、前記体積基準粒度分布曲線において積算値が50%のときの粒径値である。この中心粒径値を有する蛍光物質が頻度高く含有されていることが好ましく、頻度値は20%~50%が好ましい。このように粒径のバラツキが小さい蛍光物質を用いることにより、色ムラが抑制され良好なコントラストを有する発光装置が得られる。

(イットリウム・アルミニウム酸化物系蛍光物質) 本実施の形態で用いられる蛍光物質は、窒化物系半導体を発光層とする半導体発光素子から発光された光により励起されて発光し、セリウム(Ce)あるいはプラセオジウム(Pr)で付活されたイットリウム・アルミニウム酸化物系蛍光物質をベースとした蛍光体(YAG系蛍光体)とすることができる。具体的なイットリウム・アルミニウム酸化物系蛍光物質としては、 $YAlO_3:Ce$ 、 $Y_3Al_5O_{12}:Ce$ (YAG:Ce)や $Y_4Al_2O_9:Ce$ 、更にはこれらの混合物などが挙げられる。イットリウム・アルミニウム酸化物系蛍光物質にBa、Sr、Mg、Ca、Znの少なくとも一種が含有されていてよい。また、Siを含有させることによって、結晶成長の反応を抑制し蛍光物質の粒子を揃えることができる。

【0033】本明細書において、Ceで付活されたイットリウム・アルミニウム酸化物系蛍光物質は特に広義に解釈するものとし、イットリウムの一部あるいは全体を、Lu、Sc、La、Gd及びSmからなる群から選ばれる少なくとも1つの元素に置換され、あるいは、アルミニウムの一部あるいは全体をBa、Tl、Ga、Inの何れが又は両方で置換され発光作用を有する蛍光体を含む広い意味に使用する。

【0034】更に詳しくは、一般式 $(Y_zGd_{1-z})_3Al_5O_{12}:Ce$ (但し、 $0 < z \leq 1$ )で示されるフォトルミネッセンス蛍光体や一般式 $(Re_{1-a}Sm_a)_3Re'_5O_{12}:Ce$ (但し、 $0 \leq a < 1$ 、 $0 \leq b \leq 1$ 、Reは、Y、Gd、La、Scから選択される少なくとも一種、Re'は、Al、Ga、Inから選択される少なくとも一種である。)で示されるフォトルミネッセンス蛍光体である。この蛍光物質は、ガーネット構造のため、熱、光及び水分に強く、励起スペクトルのピークを450nm付近にさせることができる。また、発光ピークも、580nm付近にあり700nmまですそを引くブロードな発光スペクトルを持つ。

【0035】またフォトルミネッセンス蛍光体は、結晶中にGd(ガドリニウム)を含有することにより、460nm以上の長波長域の励起発光効率を高くすることができる。Gdの含有量の増加により、発光ピーク波長が長波長に移動し全体の発光波長も長波長側にシフトする。すなわち、赤みの強い発光色が必要な場合、Gdの置換量を多くすることで達成できる。一方、Gdが増加すると共に、青色光によるフォトルミネッセンスの発光輝度は低下する傾向にある。さらに、所望に応じてCeに加えTb、Cu、Ag、Au、Fe、Cr、Nd、Dy、Co、Ni、Ti、Euらを含有させることもできる。しかも、ガーネット構造を持ったイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体の組成のうち、Alの一部をGaで置換することで発光波長が短波長側へ、組成のYの一部をGdで置換することで、発光波長が長波長側へシフトすることができる。

【0036】Yの一部をGdで置換する場合、Gdへの置換を1割未満にし、且つCeの含有(置換)を0.03から1.0にすることが好ましい。Gdへの置換が2割未満では緑色成分が大きく赤色成分が少なくなるが、Ceの含有量を増やすことで赤色成分を補え、輝度を低下させることなく所望の色調を得ることができる。このような組成にすると温度特性が良好となり発光ダイオードの信頼性を向上させることができる。また、赤色成分を多く有するように調整されたフォトルミネッセンス蛍光体を使用すると、ピンク等の中間色を発光することが可能な発光装置を形成することができる。

【0037】このようなフォトルミネッセンス蛍光体は、Y、Gd、Al、及びCe、Prの原料として酸化物、又は高温で容易に酸化物になる化合物を使用し、それらを化学量論比で十分に混合して原料を得る。又は、Y、Gd、Ce、Prの希土類元素を化学量論比で酸に溶解した溶解液を蔭酸で共沈したものを焼成して得られる共沈酸化物と、酸化アルミニウムとを混合して混合原料を得る。これにフラックスとしてフッ化バリウムやフッ化アンモニウム等のフッ化物を適量混合して坩堝に詰め、空气中1350~1450℃の温度範囲で2~5時間焼成して焼成品を得、つぎに焼成品を水中でボールミルして、洗浄、分離、乾燥、最後に篩を通すことで得ることができる。

【0038】本願発明の発光ダイオードにおいて、このようなフォトルミネッセンス蛍光体は、2種類以上のセリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体や他の蛍光体を混合させてもよい。YからGdへの置換量が異なる2種類のイットリウム・アルミニウム・ガーネット系蛍光体を混合することにより、容易に所望とする色調の光を容易に実現することができる。特に、前記置換量の多い蛍光物質を上記大粒径蛍光物質とし、前記置換量の少なく又はゼロである蛍光物質を上記中粒径蛍光物質とすると、演色性および輝度の向

## 11

上を同時に実現することができる。

(窒化物系蛍光体) 本発明で使用する蛍光物質は、Nを含み、かつBe、Mg、Ca、Sr、Ba、及びZnから選択された少なくとも一種の元素と、C、Si、Ge、Sn、Ti、Zr、及びHfから選択された少なくとも一種の元素とを含み、希土類元素から選択された少なくとも一種の元素で付活された窒化物系蛍光体を含有させることができる。また、本実施の形態に用いられる窒化物系蛍光体としては、発光素子から出光した可視光、紫外線、あるいはYAG系蛍光体からの発光を吸収することによって励起され発光する蛍光体をいう。特に本発明に係る蛍光体は、Mnが添加されたSr-Ca-Si-N:Eu、Ca-Si-N:Eu、Sr-Si-N:Eu、Sr-Ca-Si-O-N:Eu、Ca-Si-O-N:Eu、Sr-Si-O-N:Eu系シリコンナイトライドである。この蛍光体の基本構成元素は、一般式 $L_x Si_y N_{(2/3x+4/3y)} : Eu$ 若しくは $L_x Si_y O_z N_{(2/3x+4/3y-2/3z)} : Eu$  (Lは、Sr、Ca、SrとCaのいずれか。) で表される。一般式中、X及びYは、X=2、Y=5又は、X=1、Y=7であることが好ましいが、任意のものも使用できる。具体的には、基本構成元素は、Mnが添加された $(Sr_{x-1} Ca_1-x)_2 Si_5 N_8 : Eu$ 、 $Sr_2 Si_5 N_8 : Eu$ 、 $Ca_2 Si_5 N_8 : Eu$ 、 $Sr_x Ca_{1-x} Si_7 N_{10} : Eu$ 、 $Sr Si_7 N_{10} : Eu$ 、 $Ca Si_7 N_{10} : Eu$ で表される蛍光体を使用することが好ましいが、この蛍光体の組成中には、Mg、Sr、Ca、Ba、Zn、B、Al、Cu、Mn、Cr及びNiからなる群より選ばれる少なくとも1種以上が含有されていてもよい。但し、本発明は、この実施の形態及び実施例に限定されない。Lは、Sr、Ca、SrとCaのいずれかである。SrとCaは、所望により配合比を変えることができる。蛍光体の組成にSiを用いることにより安価で結晶性の良好な蛍光体を提供することができる。

【0039】発光中心に希土類元素であるユウロピウムEuを用いる。ユウロピウムは、主に2価と3価のエネルギー準位を持つ。本発明の蛍光体は、母体のアルカリ土類金属系窒化ケイ素に対して、 $Eu^{2+}$ を付活剤として用いる。 $Eu^{2+}$ は、酸化されやすく、3価の $Eu_2O_3$ の組成で市販されている。しかし、市販の $Eu_2O_3$ では、Oの関与が大きく、良好な蛍光体が得られにくい。そのため、 $Eu_2O_3$ からOを、系外へ除去したものを使用することが好ましい。たとえば、ユウロピウム単体、窒化ユウロピウムを用いることが好ましい。但し、Mnを添加した場合は、その限りではない。

【0040】添加物であるMnは、 $Eu^{2+}$ の拡散を促進し、発光輝度、エネルギー効率、量子効率等の発光効率の向上を図る。Mnは、原料中に含有させるか、又

## 12

は、製造工程中にMn単体若しくはMn化合物を含有させ、原料と共に焼成する。但し、Mnは、焼成後の基本構成元素中に含有されていないか、含有されていても当初含有量と比べて少量しか残存していない。これは、焼成工程において、Mnが飛散したためであると思われる。蛍光体には、基本構成元素中に、若しくは、基本構成元素とともに、Mg、Sr、Ca、Ba、Zn、B、Al、Cu、Mn、Cr、O及びNiからなる群より選ばれる少なくとも1種以上を含有する。これらの元素は、粒径を大きくしたり、発光輝度を高めたりする等の作用を有している。また、B、Al、Mg、Cr及びNiは、残光を抑えることができるという作用を有している。

【0041】このような窒化物系蛍光体は、発光素子によって発光された青色光の一部を吸収して黄から赤色領域の光を発光する。窒化物系蛍光体をYAG系蛍光体と共に上記の構成を有する発光装置に使用して、発光素子により発光された青色光と、窒化物系蛍光体による黄色から赤色光とが混色により暖色系の白色に発光する発光装置が得られる。窒化物系蛍光体の他に加える蛍光体には、セリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム酸化物蛍光物質が含有されていることが好ましい。前記イットリウム・アルミニウム酸化物蛍光物質を含有することにより、所望の色度に調節することができるからである。セリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム酸化物蛍光物質は、発光素子により発光された青色光の一部を吸収して黄色領域の光を発光する。ここで、発光素子により発光された青色光と、イットリウム・アルミニウム酸化物蛍光物質の黄色光とが混色により青白い白色に発光する。従って、このイットリウム・アルミニウム酸化物蛍光物質と赤色発光する蛍光体とを、色変換層中に一緒に混合し、発光素子により発光された青色光とを組み合わせることにより白色系の混色光を発光する発光装置を提供することができる。特に好ましいのは、色度が色度図における黒体放射の軌跡上に位置する白色の発光装置である。但し、所望の色温度の発光装置を提供するため、イットリウム・アルミニウム酸化物蛍光物質の蛍光体量と、赤色発光の蛍光体量を適宜変更することもできる。この白色系の混色光を発光する発光装置は、特殊演色評価数R9の改善を図っている。従来の青色系の光を出光する発光素子とセリウムで付活されたイットリウム・アルミニウム酸化物蛍光物質との組合せのみの白色に発光する発光装置は、色温度 $T_{cp} = 4600K$ 付近において特殊演色評価数R9がほぼ0に近く、赤み成分が不足していた。そのため特殊演色評価数R9を高めることが解決課題となっていたが、本発明において赤色発光の蛍光体をイットリウム・アルミニウム酸化物蛍光物質と共に用いることにより、色温度 $T_{cp} = 4600K$ 付近において特殊演色評価数R9を40付近まで高めることができる。



13

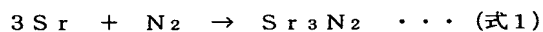
【0042】次に、本発明に係る蛍光体（ $(\text{Sr}_x\text{Ca}_{1-x})_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$ ）の製造方法を説明するが、本製造方法に限定されない。上記蛍光体には、Mn、Oが含有されている。

【0043】①原料のSr、Caを粉砕する。原料のSr、Caは、単体を使用することが好ましいが、イミド化合物、アミド化合物などの化合物を使用することもできる。また原料Sr、Caには、B、Al、Cu、Mg、Mn、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ などを含有するものでもよい。原料のSr、Caは、アルゴン雰囲気中、グローブボックス内で粉砕を行う。粉砕により得られたSr、Caは、平均粒径が約0.1μmから15μmであることが好ましいが、この範囲に限定されない。Sr、Caの純度は、2N以上であることが好ましいが、これに限定されない。より混合状態を良くするため、金属Ca、金属Sr、金属Euのうち少なくとも1以上を合金状態としたのち、窒化し、粉砕後、原料として用いることもできる。

【0044】②原料のSiを粉砕する。原料のSiは、単体を使用することが好ましいが、窒化物化合物、イミド化合物、アミド化合物などを使用することもできる。例えば、 $\text{Si}_3\text{N}_4$ 、 $\text{Si}(\text{NH}_2)_2$ 、 $\text{Mg}_2\text{Si}$ などである。原料のSiの純度は、3N以上のものが好ましいが、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、Mg、金属ホウ化物（ $\text{Co}_3\text{B}$ 、 $\text{Ni}_3\text{B}$ 、 $\text{CrB}$ ）、酸化マンガン、 $\text{H}_3\text{BO}_3$ 、 $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Cu}_2\text{O}$ 、CuOなどの化合物が含有されていてもよい。Siも、原料のSr、Caと同様に、アルゴン雰囲気中、若しくは、窒素雰囲気中、グローブボックス内で粉砕を行う。Si化合物の平均粒径は、約0.1μmから15μmであることが好ましい。

【0045】③次に、原料のSr、Caを、窒素雰囲気中で窒化する。この反応式を、以下の式1および式2にそれぞれ示す。

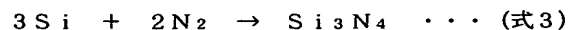
【0046】



Sr、Caを、窒素雰囲気中、600～900℃、約5時間、窒化する。Sr、Caは、混合して窒化しても良いし、それぞれ個々に窒化しても良い。これにより、Sr、Caの窒化物を得ることができる。Sr、Caの窒化物は、高純度のものが好ましいが、市販のものも使用することができる。

【0047】④原料のSiを、窒素雰囲気中で窒化する。この反応式を、以下の式3に示す。

【0048】



ケイ素Siも、窒素雰囲気中、800～1200℃、約5時間、窒化する。これにより、窒化ケイ素を得る。本発明で使用する窒化ケイ素は、高純度のものが好ましいが、市販のものも使用することができる。

14

【0049】⑤Sr、Ca若しくはSr-Caの窒化物を粉砕する。Sr、Ca、Sr-Caの窒化物を、アルゴン雰囲気中、若しくは、窒素雰囲気中、グローブボックス内で粉砕を行う。同様に、Siの窒化物を粉砕する。また、同様に、Euの化合物 $\text{Eu}_2\text{O}_3$ を粉砕する。Euの化合物として、酸化ユウロピウムを使用するが、金属ユウロピウム、窒化ユウロピウムなども使用可能である。このほか、原料のZは、イミド化合物、アミド化合物を用いることもできる。酸化ユウロピウムは、高純度のものが好ましいが、市販のものも使用することができる。粉砕後のアルカリ土類金属の窒化物、窒化ケイ素及び酸化ユウロピウムの平均粒径は、約0.1μmから15μmであることが好ましい。

【0050】上記原料中には、Mg、Sr、Ca、Ba、Zn、B、Al、Cu、Mn、Cr、O及びNiからなる群より選ばれる少なくとも1種以上が含有されていてもよい。また、Mg、Zn、B等の上記元素を以下の混合工程において、配合量を調節して混合することもできる。これらの化合物は、単独で原料中に添加することもできるが、通常、化合物の形態で添加される。この種の化合物には、 $\text{H}_3\text{BO}_3$ 、 $\text{Cu}_2\text{O}_3$ 、 $\text{MgCl}_2$ 、 $\text{MgO} \cdot \text{CaO}$ 、 $\text{Al}_2\text{O}_3$ 、金属ホウ化物（ $\text{CrB}$ 、 $\text{Mg}_3\text{B}_2$ 、 $\text{AlB}_2$ 、 $\text{MnB}$ ）、 $\text{B}_2\text{O}_3$ 、 $\text{Cu}_2\text{O}$ 、CuOなどがある。

【0051】⑥上記粉砕を行った後、Sr、Ca、Sr-Caの窒化物、Siの窒化物、Euの化合物 $\text{Eu}_2\text{O}_3$ を混合し、Mnを添加する。これらの混合物は、酸化されやすいため、Ar雰囲気中、又は、窒素雰囲気中、グローブボックス内で、混合を行う。

【0052】⑦最後に、Sr、Ca、Sr-Caの窒化物、Siの窒化物、Euの化合物 $\text{Eu}_2\text{O}_3$ の混合物をアンモニア雰囲気中で、焼成する。焼成により、Mnが添加された $(\text{Sr}_x\text{Ca}_{1-x})_2\text{Si}_5\text{N}_8:\text{Eu}$ で表される蛍光体を得ることができる。ただし、各原料の配合比率を変更することにより、目的とする蛍光体の組成を変更することができる。

【0053】焼成は、管状炉、小型炉、高周波炉、メタル炉などを使用することができる。焼成温度は、1200から1700℃の範囲で焼成を行うことができるが、1400から1700℃の焼成温度が好ましい。焼成は、徐々に昇温を行い1200から1500℃で数時間焼成を行う一段階焼成を使用することが好ましいが、800から1000℃で一段階目の焼成を行い、徐々に加熱して1200から1500℃で二段階目の焼成を行う二段階焼成（多段階焼成）を使用することもできる。蛍光体の原料は、窒化ホウ素（BN）材質のるつぼ、ポートを用いて焼成を行うことが好ましい。窒化ホウ素材質のるつぼの他に、アルミナ（ $\text{Al}_2\text{O}_3$ ）材質のるつぼを使用することもできる。

【0054】以上の製造方法を使用することにより、目

的とする蛍光体を得ることが可能である。

【0055】本実施の形態において、赤味を帯びた光を発光する蛍光体として、特に窒化物系蛍光体を使用するが、本発明においては、上述したYAG系蛍光体と赤色系の光を発光可能な蛍光体とを備える発光装置とすることも可能である。このような赤色系の光を発光可能な蛍光体は、波長が400～600nmの光によって励起されて発光する蛍光体であり、例えば、 $Y_2O_2S:Eu$ 、 $La_2O_2S:Eu$ 、 $CaS:Eu$ 、 $SrS:Eu$ 、 $ZnS:Mn$ 、 $ZnCdS:Ag$ 、 $Al$ 、 $ZnCdS:Cu$ 、 $Al$ 等が挙げられる。このようにYAG系蛍光体とともに赤色系の光を発光可能な蛍光体を使用することにより発光装置の演色性を向上させることが可能である。

【0056】以上のようにして形成されるYAG系蛍光体、および窒化物系蛍光体に代表される赤色系の光を発光可能な蛍光体は、発光素子の側方端面において一層からなる色変換層中に二種類以上存在してもよいし、二層からなる色変換層中にそれぞれ一種類あるいは二種類以上存在してもよい。このような構成にすると、異なる種類の蛍光体からの光の混色による混色光が得られる。この場合、各蛍光物質から発光される光をより良く混色しかつ色ムラを減少させるために、各蛍光体の平均粒径及び形状は類似していることが好ましい。また、窒化物系蛍光体は、YAG蛍光体により波長変換された光の一部を吸収してしまうことを考慮して、窒化系蛍光体がYAG系蛍光体より発光素子の側方端面に近い位置に配置されるように色変換層を形成することが好ましい。さらに、窒化系蛍光体がYAG系蛍光体より異方性導電層に近い位置に配置されるように色変換層を形成することが好ましい。このように構成することによって、YAG蛍光体により波長変換された光の一部が窒化物系蛍光体に吸収されてしまうことがなくなり、YAG系蛍光体と窒化物系蛍光体とを混合して色変換層に含有させた場合と比較して、両蛍光体による混色光の演色性を向上させることができる。

【フィラー】更に、本発明において、色変換層中に蛍光物質に加えてフィラーを含有させても良い。具体的な材料は拡散剤と同様であるが、拡散剤と中心粒径が異なり、本明細書においてフィラーとは中心粒径が5 $\mu m$ 以上100 $\mu m$ 以下のものをいう。このような粒径のフィラーを透光性樹脂中に含有させると、光散乱作用により発光装置の色度バラツキが改善される他、透光性樹脂の耐熱衝撃性を高めることができる。また、フィラーは蛍光物質と類似の粒径及び／又は形状を有することが好ましい。ここで本明細書では、類似の粒径とは、各粒子のそれぞれの中心粒径の差が20%未満の場合をいい、類似の形状とは、各粒径の真円との近似程度を表す円形度（円形度＝粒子の投影面積に等しい真円の周囲長さ／粒子の投影の周囲長さ）の値の差が20%未満の場合をい

う。このようなフィラーを用いることにより、蛍光物質とフィラーが互いに作用し合い、樹脂中にて蛍光物質を良好に分散させることができ色ムラが抑制される。更に、蛍光物質及びフィラーは、共に中心粒径が15 $\mu m$ ～50 $\mu m$ 、より好ましくは20 $\mu m$ ～50 $\mu m$ であると好ましく、このように粒径を調整することにより、各粒子間に好ましい間隔を設けて配置させることができる。これにより光の取り出し経路が確保され、フィラー混入による光度低下を抑制しつつ指向特性を改善させることができる。また、このような粒径範囲の蛍光物質及びフィラーを透光性樹脂に含有させ孔版印刷法にて封止部材を形成すると、封止部材硬化後のダイシング工程においてダイシングブレードの目詰まりが回復されドレッシング効果をもたらすことができ量産性が向上される。

【光拡散層7】また、発光素子と該発光素子の側方端面に配置する色変換層との表面からなる一平面上に、光透過率を高めるため透光性部材を設けてもよいし、該透光性部材中に発光素子からの光及び蛍光物質からの光を反射散乱することが可能な拡散剤を有して成る光拡散層7を設けてもよい。この場合、前記発光素子表面と前記色変換層表面との高さをほぼ平行とすると、容易に均一な膜厚を有する光拡散層を形成することができ、良好な混色性が得られ好ましい。光拡散層は、ポッティング、スプレーコーティング、孔版印刷等、従来の種々手法にて形成することができる。

【0057】本発明において拡散剤は、特に限定されず、チタン酸バリウム、硫酸バリウム、酸化チタン、酸化アルミニウム、酸化珪素、軽質炭酸カルシウム、重質炭酸カルシウム等、種々のものを用いることができる。拡散剤の粒径値は、中心粒径が1.0 $\mu m$ 以上5 $\mu m$ 未満であることが好ましく、より好ましくは1.0 $\mu m$ 以上2.5 $\mu m$ 未満であり、上記粒径値を有する拡散剤を用いると発光素子及び蛍光物質からの光を良好に乱反射させ色ムラを抑制することができ好ましい。また、拡散剤が破砕形の場合、透過型電子顕微鏡法により測定される長辺長は1.0 $\mu m$ 以上3.0 $\mu m$ 未満が好ましい。前記透光性部材100重量部に対して前記拡散剤の含有量は、0.5重量部以上5重量部以下が好ましい。これにより、発光素子及び蛍光物質からの光の取り出し効率を低下させることなく発光装置の光度及び信頼性を向上させることができる。また、発光スペクトルの半値幅を狭めることができ、色純度の高い発光装置が得られる。前記透光性部材の屈折率は1.4以上1.65以下が好ましく、拡散剤の屈折率は、透光性部材よりも高いことが好ましい。これにより拡散剤により良好に光が反射散乱され優れた混色性を有する面発光型発光装置が得られる。

【0058】光拡散層の構成部材である透光性部材は、色変換層と同様、用いる発光素子の特徴や用途に応じて、有機物及び無機物のいずれをも持ちいることがで

き、エポキシ樹脂、アクリル樹脂、ウレタン樹脂、ジアリルフタレート樹脂、シリコン樹脂、ガラス等が好適に用いられる。

【0059】有機物のうち、比較的高い耐光性を有する部材として、親水性主鎖と疎水性側鎖からなる透光性ポリマー樹脂が挙げられる。親水性主鎖と疎水性主鎖からなる透光性ポリマー樹脂は、熱により硬化収縮せず、また硬化後表面にタック性を有するため、非常に取り扱いにくい。

【0060】例えば、本実施の形態のごとくパッケージ内に前記透光性ポリマー樹脂を塗布する場合、充填量をパッケージ最上面より内側のラインまで充填するように微量調整して形成されるため、発光面は凸凹になる傾向にあり色むらや指向特性のバラツキが生じる。また、各発光装置において前記ポリマー樹脂の注入量を一定にすることは困難であり、前記ポリマー樹脂に拡散剤を均一に配置することができず、各発光装置間に色バラツキが見られる。

【0061】そこで本実施の形態では、親水性主鎖と疎水性側鎖からなる透光性ポリマー樹脂に、吸油量の調整が可能な拡散剤を組み合わせることで光拡散層を形成する。このような構成からなる拡散層は、塗布段階の液状から熱作用により硬化することにより、塗布段階より薄い膜厚にて固化することができる。具体的には、パッケージ凹部の最上面まで液状混合液を充填し熱硬化後すると、得られた光拡散層はパッケージ内部に収まり端部から中央部にかけて滑らかな放物線状の凹部を有する形状となる。これにより、塗布段階において充填量を微量調節することなく信頼性に優れた光拡散層を容易に形成することができる。この作用は、おそらく、拡散剤の吸油量の割合が樹脂の加熱硬化工程により促進され、樹脂中の成分の一部が拡散剤にて吸収される一方、拡散剤の樹脂の吸収率は前記樹脂を吸収することによる体積増加率よりも高く、結果拡散層の体積が全体的に減少するものだと思う。

【0062】上記拡散剤の吸油量は、表面処理の度合いにより調整することができる。表面処理は、 $Al_2O_3$ 、 $Fe_2O_3$ 、 $Si$ 等を用いて行うことができる。体積を大幅に減少させたい場合には、表面処理を殆ど行われていない状態で用いることが好ましい。表面処理を施す度合いが大きいほど拡散剤の吸油量は減少する。このように拡散剤の表面処理の度合いを調整することにより、所望とする厚さの光拡散層を容易に形成することができる。このような吸油量が調整可能な拡散剤として、軽質炭酸カルシウム、重質炭酸カルシウム、タルク、ホワイトカーボン、炭酸マグネシウム、含水硅酸アルミニウム・マグネシウム等があげられる。また拡散剤の吸油量は、表面処理を施していない状態で、 $30ml/100g$ 以上 $150ml/100g$ 以下であることが好ましい。これにより後に表面処理を行うことで幅広い

吸油量の設定が可能となる。本明細書において吸油量とは、日本工業規格(JIS K5101)の吸油量試験法により測定された値とする。

【0063】親水性主鎖と疎水性側鎖からなる透光性ポリマー樹脂と吸油量が調整可能な拡散剤とからなる光拡散層は、拡散剤の樹脂吸収により形成される両端部から中央部にかけて放物線状に凹んだ滑らかな発光面を有するため、均一に光を発する面光源を実現することができる。更に、発光面が発光面側からみて窪み程度が長軸及び短軸にてほぼ左右対称であることが好ましく、これにより良好な指向特性を有する発光措置が得られる。このような曲面である発光面は、例えば孔版印刷法により形成される。

【0064】このように、本実施の形態の光拡散層は、親水性主鎖と疎水性側鎖からなる透光性ポリマー樹脂と吸油量が調整可能な拡散剤とからなる光拡散層を用いるため、充填量を見た目により微調整する必要がなく充填量をパッケージ上面と同一平面ラインに充填すればよい。これにより、硬化後表面にタック性を有するにも関わらず、他の透光性部材と同様に従来知られている様々な手法にて形成することができる。

【0065】

【実施例】以下、本発明の実施例について説明する。なお、本発明は以下に示す実施例のみに限定されるものではない。

(実施例1) 図1に示すような表面実装型の発光装置を形成する。発光素子であるLEDチップは、発光層として単色性発光ピークが可視光である $475nm$ の $In_0.2Ga_{0.8}N$ 半導体を有する窒化物半導体素子を用いる。より具体的には、LEDチップは、洗浄させたサファイア基板上にTMG(トリメチルガリウム)ガス、TMI(トリメチルインジウム)ガス、窒素ガス及びドーパントガスをキャリアガスと共に流し、MOCVD法で窒化物半導体を成膜させることにより形成させることができる。ドーパントガスとして $SiH_4$ と $Cp_2Mg$ を切り替えることによってn型窒化物半導体やp型窒化物半導体となる層を形成させる。

【0066】LEDチップの素子構造としては、サファイア基板上に、アンドープの窒化物半導体であるn型GaN層、Siドーパのn型電極が形成されn型コンタクト層となるGaN層、アンドープの窒化物半導体であるn型GaN層、次に発光層を構成するバリア層となるGaN層、井戸層を構成するInGaN層、バリア層となるGaN層を1セットとしGaN層に挟まれたInGaN層を5層積層させた多重量子井戸構造としてある。発光層上にはMgがドーパされたp型クラッド層としてAlGaN層、Mgがドーパされたp型コンタクト層であるGaN層を順次積層させた構成としてある。(なお、サファイア基板上には低温でGaN層を形成させバッファ層とさせてある。また、p型半導体は、成膜後400

℃以上でアニールさせてある。)

次に、エッチングによりサファイア基板上の窒化物半導体に同一面側で、pn各コンタクト層表面を露出させる。各コンタクト層上に、スパッタリング法を用いて正負各台座電極をそれぞれ形成させた。なお、p型窒化物半導体上の全面には金属薄膜を透光性電極として形成させた後に、透光性電極の一部に台座電極を形成させてある。出来上がった半導体ウエハをスクライブラインを引いた後、外力により分割し、半導体積層面側に正負一対の電極を有し且つ側方端面から発光の一部を発光することが可能なLEDチップを形成する。

【0067】次に、正及び負からなる一対のリード電極がインサートされて閉じられた金型内に、パッケージ成形体の下面側にあるゲートから熔融された成形樹脂を流し込み硬化してパッケージを形成する。前記パッケージは、発光素子を収納可能な凹部を有し、該凹部底面から正及び負のリード電極が一方の主面が露出されるように一体成形されている。尚、このパッケージにおいて、正及び負のリード電極のアウタリード部は、パッケージの接合面の両端部でその接合面に沿って内側に折り曲げられてなり、その内側に折り曲げられた部分ではんだ付けされるように構成されている。

【0068】次に、中心粒径 $3\mu\text{m}$ の球状プラスチック粒子上にNi薄膜を無電解メッキ法にて形成した後、最外層にAu薄膜を置換メッキ法により形成した導電粒子をシリコン樹脂に対して前記導電粒子を5vol%添加し、上記パッケージの凹部底面を覆うように膜厚が $10\mu\text{m}$ 以上 $20\mu\text{m}$ 以下の範囲となるよう塗布する。次に、パッケージ凹部底面から露出された各リード電極上に、LEDチップの各電極を対向させ上記の塗布液中に前記LEDチップの電極形成面及び側方端面の一部が埋没するように載置し、加熱及び加圧を施し異方性導電層を固化すると共に各電極を電気的に接続させる。

【0069】次に、蛍光物質は、Y、Gd、Al、及びCeのそれぞれの酸化物を化学量論比により混合し混合原料を得る。これにフラックスを混合して坩堝に詰め、ボールミル混合機にて2時間混合する。ボールを取り除いた後、還元雰囲気中 $1400^\circ\text{C}\sim 1600^\circ\text{C}$ にて6時間焼成し、更に還元雰囲気中 $1400^\circ\text{C}\sim 1600^\circ\text{C}$ にて6時間焼成する。焼成品を水中でボールミルして、洗浄、分離、乾燥、最後に篩を通して中心粒径が $8\mu\text{m}$ である(Y<sub>0.8</sub>Gd<sub>0.2</sub>)<sub>2</sub>SiO<sub>5</sub>:Al<sub>0.2</sub>:Ce<sub>0.2</sub>蛍光物質を形成する。

【0070】シリコン樹脂100重量部に対して、上記蛍光物質を150重量部添加したものを、前記異方性導電層上面及び前記LEDチップの側方端面に接して、前記LEDチップの最上面とほぼ同一ラインまでほぼ均一な膜厚にて充填させ、 $50^\circ\text{C}\times 2$ 時間、及び $150^\circ\text{C}\times 4$ 時間熱処理を施し色変換層を形成する。

【0071】次に、シリコン樹脂100重量部に対し

て中心粒径 $3\mu\text{m}$ 、凝集度93%、吸油量 $70\text{ml}/100\text{g}$ である軽質炭酸カルシウムを3重量部含有させ、自転公転ミキサーにて5分間攪拌を行う。次に攪拌処理により生じた熱を冷ますため、30分間放置し樹脂を定温に戻し安定化させる。こうして得られた混合液を前記パッケージ凹部内に、前記凹部の両端部上面と同一平面ラインまで充填させる。最後に、 $50^\circ\text{C}\times 2$ 時間、及び $150^\circ\text{C}\times 4$ 時間熱処理を施す。これにより、前記凹部の両端部上面から中央部にかけてほぼ左右対称の放物線状に凹みを有する発光面が得られる。

【0072】このようにして形成された発光ダイオードは、LEDチップ上面から発光される青色光は前方に向かって出力高く放射され、LEDチップの側方端面から発光される光の一部は隣接する色変換層中に直接入射し、前記側方端面から発光される光の残りの部分は隣接する異方性導電膜中へと導かれ含有される導電粒子にて反射散乱した後、上方に積層された色変換層へ入射する。これにより、全ての蛍光物質に効率よく励起光を照射することが可能となり、色変換層からは蛍光物質から発光される黄色光が前方に向かって放射される。これら青色光と黄色光は、前方の光拡散層にて良好に混色され、前方には白色光が現れる。

【0073】以上のように本例の発光装置では、発光素子の四方八方から発光される光をそれぞれ効率よく利用しているため、光の透過率が高く高出力の光を得ることができる。また、それぞれの部材に用いられる透光性部材を同一材料とすることにより、各部材間の界面における光透過率及び信頼性を高めることができる。このようにして得られた色変換型発光装置は、光度 $500\text{mc}$ d、光出力 $4\text{mW}$ であり、良好な指向特性が得られる。また、高温保管試験( $100^\circ\text{C}$ )、高温高湿保管試験( $80^\circ\text{C}$ 、85%RH)、低温保管試験( $-40^\circ\text{C}$ )において、出力の低下はほとんどみられず、高い信頼性を有するといえる。またCIE色度座標におけるx軸方向の色度の $3\sigma$ は0.006であり、色バラツキが非常に少ない発光装置が得られる。

(実施例2) 図2の如く、前記色変換層を挟んで複数個の発光素子が載置されている以外は実施例1と同様にして集積型発光装置を形成すると、更に混色性に優れ高出力で発光することが可能な発光装置が得られる。

(実施例3) 図3の如く、各発光素子として複数の発光層を有するLEDアレイ発光素子を用いる以外は実施例2と同様にして集積型発光装置を形成すると、実施例2と同様の効果が得られる。

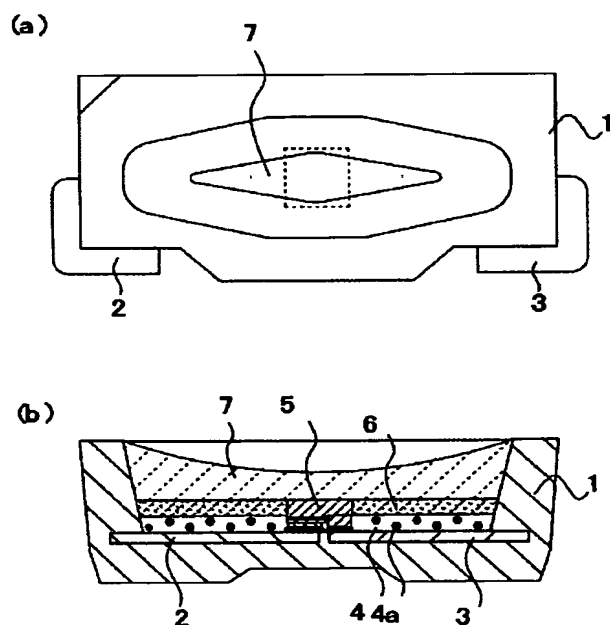
【0074】

【発明の効果】本発明の発光装置は、発光素子の側方端面の上方に接して色変換層を設け、その下方に接して異方性導電層を設けることにより、前記側方端面から発光される励起光を色変換層の側方端面及び下方底面の2方向から照射することにより、色変換層中の蛍光物質の効

21

率を高めるものである。また更に、発光素子上方面には色変換層を配置せず、発光素子側端面側のみに色変換層を設けることにより、蛍光物質の配置パターンを一定とすることができ発光装置間での色バラツキを抑制することができると共に、発光素子から発光される光及び色変換層から発光される光をそれぞれ高出力にて上方へ取り出すことができる。また、前記発光素子上面及び前記色変換層上面に接して、信頼性の高い親水性主鎖と疎水性主鎖からなるポリマー樹脂と吸油率の調整が可能な拡散剤とからなる連続した光拡散層を設けることにより、発光面を端部から中央部にかけて凹みを有する滑面とすることができる。これにより、塗布段階の作業を簡略化できるとともに均一な面光源を得ることができる。また、複数の発光素子を高密度に信頼性高く実装することが可能であり、長寿命で且つ照明と同等の明るさを発光することが可能な発光装置を実現することができる。

【図 1】



22

## 【図面の簡単な説明】

【図 1】 図 1 は本発明の発光装置を示す模式的平面図及び模式的断面図である。

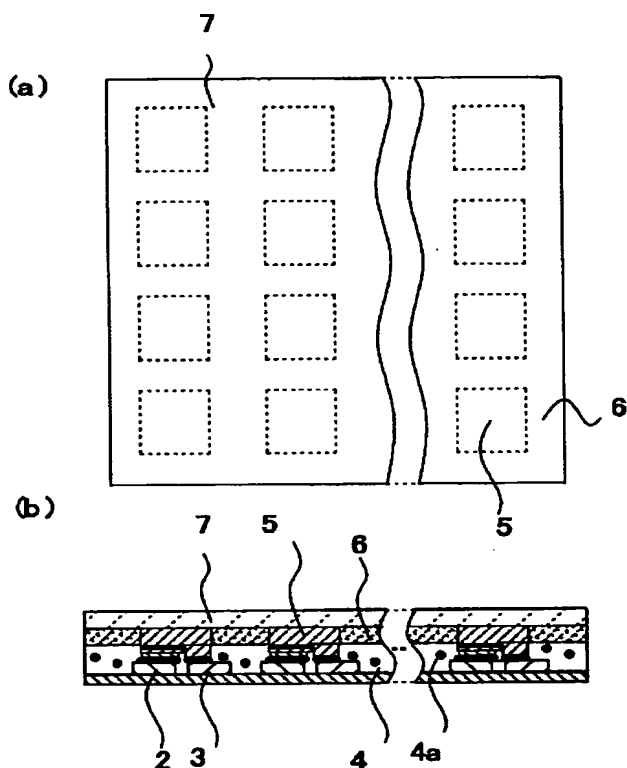
【図 2】 図 2 は本発明の他の発光装置を示す模式的平面図及び模式的断面図である。

【図 3】 図 3 は本発明の他の発光装置を示す模式的平面図及び模式的断面図である。

## 【符号の説明】

- 1・・・パッケージ
- 2、3・・・外部電極
- 4・・・異方性導電層
- 4a・・・導電粒子
- 5・・・発光素子
- 6・・・色変換層
- 7・・・光拡散層

【図 2】



【図3】

